

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

E2U



REC'D	02 AUG 1999
WIPO	PCT

PRIORITY DOCUMENT
 SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
 COMPLIANCE WITH
 RULE 17.1(a) OR (b)

Bescheinigung

Die Siemens Aktiengesellschaft in München/Deutschland hat eine Patentanmeldung
 unter der Bezeichnung

"Brennstoffzelle mit verbesserter Langzeitperformance"

am 10. August 1998 beim Deutschen Patent- und Markenamt eingereicht.

Die Anmeldung ist auf die Siemens Aktiengesellschaft in München/Deutschland
 und die Aventis Research & Technologies GmbH & Co KG in Frankfurt am Main/
 Deutschland umgeschrieben worden.

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprüng-
 lichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

Die Anmeldung hat im Deutschen Patent- und Markenamt vorläufig das Symbol
 H 01 M 8/02 der Internationalen Patentklassifikation erhalten.

München, den 19. Mai 1999
 Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident

Im Auftrag

Aktenzeichen: 198 36 142.4

Seiler

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Beschreibung

Brennstoffzelle mit verbesserter Langzeitperformance

5 Die Erfindung betrifft eine Polymer-Elektrolyt-Membran-
(PEM) Brennstoffzelle mit neuartiger Konstruktion des Randbe-
reichs.

Aus der DE-PS 44 42 285 ist eine Konstruktion eines Randbe-
reichs einer PEM-Brennstoffzelle bekannt (siehe dort Fig.2),
bei der die Randabdichtung durch ein Rahmenelement erfolgt,
das auf die Membran oben und unten das jeweils angrenzende
Kollektorbblech so andrückt, daß die drei Teile mechanisch
fest, gasdicht und elektronisch isolierend miteinander ver-
bunden sind. Die beiden Elektroden, mit denen die Membran auf
jeder Seite beschichtet ist, erstrecken sich nicht bis in
diesen Randbereich. An der Grenze zwischen Elektrodenbe-
schichtung der Membran und Randabdichtung entsteht somit ein
winziger Spalt, an dem die Membran direkt, d.h. ohne schüt-
zende Elektrodenschicht, den Prozeßgasen ausgesetzt ist. Dies
kann dort zu einer Austrocknung und Versprödung der Membran
führen. Auch können Vorschäden, die z.B. beim Heißpressen der
Membran-Elektroden-Einheit entstehen können, an dieser Stel-
le, wo die Membran direkt den Prozeßgasen ausgesetzt ist, zu
Gasdurchbrüchen führen. Die Einsatzzeit oder Langzeitperfor-
mance einer Membran ist entsprechend durch diesen Spalt, an
dem die Membran direkt den Prozeßgasen ausgesetzt ist, be-
schränkt.

20 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, eine PEM-
Brennstoffzellenkonstruktion mit verbesserter Langzeitperfor-
mance zu schaffen.

Diese Aufgabe wird durch eine PEM-Brennstoffzelle nach An-
spruch 1, durch das Verfahren zu ihrer Herstellung nach An-
spruch 4 und durch die Bereitstellung der Brennstoffzellen-
batterie nach Anspruch 5 gelöst. Weitere Ausgestaltungen der

Erfindung gehen aus der Beschreibung, den Figuren und den Erläuterungen dazu hervor.

Gegenstand der Erfindung ist eine PEM-Brennstoffzelle, eine
5 negative Polplatte, eine negative Elektrode, eine Membran,
eine positive Elektrode und eine positive Polplatte mit je
mindestens vier Versorgungs- oder Entsorgungsöffnungen für
die Prozeßgase umfassend, wobei im Randbereich die Membran
10 mit der positiven und negativen Polplatte durch ein Rahmen-
element mechanisch fest, gasdicht und elektronisch isolie-
rend verbunden ist, mit der Maßgabe, daß die positive
und/oder die negative Elektrodenschicht auf der Membran noch
in den Randbereich hineinragt. Durch diese Vergrößerung zu-
mindest einer Elektrodenschicht wird nicht nur erreicht, daß
15 die Membran, zumindest auf der einen Seite nicht mehr unmit-
telbar dem Prozeßgas ausgesetzt ist, sondern es bildet sich
sogar ein kleines Wasserreservoir an der Grenze zwischen
elektrodenbeschichteter und freier Membran im Randbereich,
das die Membran kontinuierlich befeuchtet.

20 Ebenso ist Gegenstand der Erfindung ein Verfahren zur Her-
stellung einer PEM-Brennstoffzelle, bei dem zumindest eine
Elektrodenschicht auf der Membran größer als die Kontaktflä-
che und/oder der Stromabnehmer ist, so daß sie in den Randbe-
reich 25 hineinragt.

Schließlich ist Gegenstand der Erfindung eine PEM-
Brennstoffzellenbatterie, zumindest zwei PEM-Brennstoffzellen
nach einem der Ansprüche 1 bis 3 umfassend.

30 Als Polplatte werden hier alle Arten von Separatoren und
Kühl- und Kontaktblechen bezeichnet, die den Gasraum einer
Brennstoffzelle auf der, der Membran gegenüberliegenden Seite
umschließen.

35 Die Elektrode oder Elektrodenschicht umfaßt eine aktive Kata-
lysatorschicht und einen Träger, wie z.B. ein Kohlepapier.

Die Membran ist eine protonenleitende Elektrolytfolie, die im Betriebszustand einen Wassergehalt von ca. 20-40 Gew% hat.

5 Bevorzugt sind im Randbereich Dichtungen zwischen den Polplatten und der Membran angeordnet.

Nach einer Ausgestaltung der Erfindung ist das Rahmenelement aus Metall und im Randbereich zusätzlich eine elektrisch isolierende Schicht vorhanden.

10 Im folgenden wird die Erfindung anhand von zwei Figuren erläutert:

15 Figur 1 zeigt den Aufbau einer Brennstoffzelle im Querschnitt und

Figur 2 zeigt eine Detailvergrößerung des Randbereichs.

20 In Figur 1 ist eine Brennstoffzelle 1 zu sehen. In der Mitte befindet sich die Membran 2, die sich über die ganze Länge der Zelle erstreckt. Bis zum Rand hin ist die Membran beidseitig mit den Elektroden 3 und 4 beschichtet. Am Rand sieht man die Dichtungen 5 und 6, die an die beiden Seiten der Membran dort anschließen, wo die Elektroden aufhören. Zu erkennen sind oben und unten die Polplatten 7 und 8, die die beiden Reaktionsräume 11 und 12 der Brennstoffzelle 1 auf der, der Membran 2 gegenüberliegenden Seite begrenzen.

25 30 Der in Figur 1 gewählte Querschnitt durch die Brennstoffzelle 1 ist durch die Ver- oder Entsorgungskanäle 9/10 für die Prozeßgase gelegt. In den Polplatten 7 und 8 sind deshalb jeweils zwei Ent- oder Versorgungsöffnungen zu sehen, durch die die Prozeßgase, z.B. in Pfeilrichtung, strömen. Die Zellfläche zwischen den Ent- und Versorgungskanälen ist die aktive Zellfläche. Jenseits der Kanäle ist der Randbereich der Brennstoffzelle.

Im Betrieb strömt ein Prozeßgas, z.B. der Brennstoff durch die Verteilungskanäle 13 in einen der beiden Reaktionsräume 11/12, z.B. die Anodenkammer 11, entlang der aktiven Zellfläche, wo der Umsatz von Oxidans und Brennstoff zu Wasser und Strom stattfindet. Entlang der aktiven Zellfläche wird das Produktwasser regelmäßig abtransportiert. Bislang ist die aktive Zellfläche die einzige Stelle einer Brennstoffzelle, an der Produktwasser entsteht. Nach der Erfindung findet nun auch Umsatz in geringem Maß im Randbereich der Zelle, dort wo die Elektrodenschichten erfindungsgemäß entlang der Membran verlängert wurden, statt. Dahin gelangen die Prozeßgase praktisch nur durch Diffusion durch den Träger der aktiven Katalysatorschicht, also z.B. durch das Kohlepapier, hindurch, weil die Polplatten im Randbereich keine Verteilungs-kanäle 13 haben.

Die Prozeßgasströme im Randbereich sind wie ausgeführt klein oder gar nicht vorhanden und deshalb kann das dort entstehende Produktwasser nicht abtransportiert werden. So sammelt sich Produktwasser 14 in dem entstehenden Spalt, der an das Ende der Elektrodenschicht auf der Membran angrenzt. Es bildet sich damit ein kleines Wasserreservoir 14 zwischen den Dichtungen 5 und 6 und der Membran 2. Dieses Wasserreservoir bietet die folgenden Vorteile:

- 1.) Die Membranfläche, die außerhalb der aktiven Elektrodenfläche liegt, ist immer von Wasser umgeben. Membranen, deren mechanische Beständigkeit stark vom Wassergehalt abhängen, sind so langzeitstabil einsetzbar.
- 2.) Eventuell vorhandene Schädigungen im Randbereich der Membran, die z.B. ihren Ursprung im Heißpressen haben, können bislang, d.h. ohne das Wasserreservoir, zu Gasdurchbrüchen führen. Aufgrund des nun vorhandenen Wasserpolsters können nur noch in Wasser gelöste Gase zur Membran hindiffundieren. Diese Gasmenge ist so klein, daß eine örtliche Überhitzung

und weitere Schädigung der Membran, wie z.B. ein Gasdurchbruch, auszuschließen ist.

3.) Eine Versprödung und Austrocknung der Membran im Randbereich wird verhindert.

In Figur 2 wird der in Figur 1 umrandete Bereich im Detail gezeigt. In der Mitte angeordnet ist die Membran 2, die am Rand von den Dichtungen 5 und 6 umgeben ist. Sie ist zur Mitte der Zellfläche hin beschichtet mit den Elektroden 3 und 4, die aus den Katalysatorschichten 3a und 4a und den Trägern 3b und 4b bestehen. Zu erkennen ist der axiale Versorgungskanal 10, die Polplatten 7 und 8 mit ihren Verteilungskanälen 13 in den Reaktionsräumen 11 und 12. Am Ende der Elektrodenbeschichtung der Membran bildet sich jeweils ein Wasserreservoir 14, weil das dort entstehende Produktwasser nicht abtransportiert werden kann.

Patentansprüche

1. PEM-Brennstoffzelle, eine negative Polplatte, eine negative Elektrode, eine Membran, eine positive Elektrode und eine positive Polplatte mit je mindestens vier Versorgungs- oder Entsorgungsöffnungen für die Prozeßgase umfassend, wobei im Randbereich die Membran mit der positiven und negativen Polplatte durch ein Rahmenelement mechanisch fest, gasdicht und elektronisch isolierend verbunden ist, mit der Maßgabe, daß die positive und/oder die negative Elektrodenschicht auf der Membran noch in den Randbereich hineinragt.
2. PEM-Brennstoffzelle nach Anspruch 1, bei der im Randbereich Dichtungen zwischen der Membran und dem Rahmenelement angebracht sind.
3. PEM-Brennstoffzelle nach einem der Ansprüche 1 oder 2, bei der das Rahmenelement aus Metall ist und zusätzlich eine elektronisch isolierende Schicht vorhanden ist.
4. Verfahren zur Herstellung einer PEM-Brennstoffzelle, bei dem zumindest eine Elektrodenschicht auf der Membran größer als die Kontaktfläche und/oder der Stromabnehmer ist, so daß sie in den Randbereich hineinragt.
5. Brennstoffzellenbatterie aus elektrisch in Serie geschalteten Brennstoffzellen, die einen Stapel aus zumindest zwei mechanisch miteinander verbundenen Brennstoffzellen nach einem der Ansprüche 1 bis 3 umfaßt.

Zusammenfassung

Brennstoffzelle mit verbesserter Langzeitperformance

5 Die Erfindung betrifft eine PEM-Brennstoffzelle, die eine neuartige Randkonstruktion zeigt, bei der sich in einem winzigen Spalt zwischen Membran und Randabdichtung ein Wasserreservoir bildet, das die Einsatzzeit einer Polymer-Elektrolyt-Membran, insbesondere bei trockenen Prozeßgasen, entscheidend
10 verbessert.

Figur 1

